

19



CONFÉDÉRATION SUISSE

INSTITUT FÉDÉRAL DE LA PROPRIÉTÉ INTELLECTUELLE

⑪ CH 689 109 A5

51 Int. Cl.⁶: A 61 J 003/00
A 61 K 009/00

Brevet d'invention délivré pour la Suisse et le Liechtenstein
 Traité sur les brevets, du 22 décembre 1978, entre la Suisse et le Liechtenstein

(12) FASCICULE DU BREVET A5

②1 Numéro de la demande: 01825/97

22 Date de dépôt: 30.07.1997

30 Priorité: 14.08.1996 BE 09600696

(24) Brevet délivré le: 15.10.1998

④ Fascicule du brevet
publiée le: **15.10.1998**

73 Titulaire(s):
Boss Pharmaceuticals AG, Industriestrasse 28,
9303 Wittenbach (CH)

72 Inventeur(s):
Andreas Bosshardt, Ebnetstrasse 25b,
9032 Engelburg (CH)

74 Mandataire:
Patentanwaltsbüro Feldmann AG, Kanalstrasse 17,
Postfach, 8152 Opfikon-Glattbrugg (CH)

(54) Procédé pour la fabrication de produits pharmaceutiques et produits pharmaceutiques ainsi obtenus.

(57) L'invention concerne un procédé pour la fabrication de produits pharmaceutiques, de type gélule, comprimé, sachet, etc., par conditionnement de produits en granules et/ou en poudre, en appliquant des vibrations de type ultrasoniques au niveau de l'alimentation des produits en granules et/ou en poudre vers le dispositif mis en œuvre pour l'élaboration de ces produits pharmaceutiques. Le dispositif utilisé comprend un émetteur d'ultrasons prévu au niveau du dispositif d'alimentation des produits en granules et/ou en poudre vers le dispositif de conditionnement de ces produits pharmaceutiques. L'invention concerne enfin des produits pharmaceutiques obtenus au moyen d'un tel procédé.

BEST AVAILABLE COPY



Description

L'invention concerne un procédé en vue de la fabrication de produits pharmaceutiques, en particulier un procédé pour la conditionnement de produits pharmaceutiques sous forme de gélules, comprimés, pastilles, dragées, pilules, granules, sachets, etc. Dans la fabrication de tels produits il est notamment fait appel à des techniques de broyage, tamisage, mélange et granulage et à des techniques de dosage, compression, encapsulation, ensachage, etc. toutes bien connues en soi dans la profession. Il est fait référence à cet égard à des ouvrages généraux, tel que *Pharmaceutics. The science of dosage form design*, Ed. M.E. Aulton, Churchill Livinstone, Edinburgh, London Melbourne and New York 1988.

Ainsi, pour la fabrication de gélules, de comprimés ou de sachets, les composants en poudre sont d'abord tamisés, mélangés et éventuellement granulés pour obtenir des grains plus grands ayant de propriétés rhéologiques meilleures. Ces poudres et granules ou granulats sont ensuite introduits dans l'entonnoir ou trémie de chargement des divers dispositifs mis en œuvre dans la fabrication proprement dite des gélules, comprimés ou sachets. La poudre ou le granulat arrive ensuite par l'intermédiaire de l'embouchure de la trémie au lieu où ces différentes formes galéniques sont élaborées ou remplies. Il est alors essentiel que la quantité de produit sortant par unité de temps de l'embouchure de la trémie soit précise et constante afin d'assurer un dosage exact par unité de prise. D'où l'importance cruciale d'une vitesse d'écoulement constante de la poudre ou du granulat.

Il a toutefois été constaté dans la pratique que cet écoulement est souvent perturbé par des phénomènes divers, difficilement contrôlables, tel que l'inclusion d'air entre les particules de poudre ou de granulat, le degré d'humidité des particules et leur agglomération, adhésion et cohésion ainsi que les frottements entre elles et par rapport aux surfaces de transport.

La présente invention a pour objet de remédier aux inconvénients rencontrés dans l'état de la technique actuelle en procurant un procédé nouveau pour la fabrication de produits pharmaceutiques de type gélules, comprimés, sachets, etc., et en offrant des produits pharmaceutiques de qualité améliorée.

Le procédé selon l'invention, destiné à conditionner des produits pharmaceutiques sous forme de gélules, comprimés, sachets, etc., par formulation de produits en granules et/ou en poudre, comprend l'utilisation de vibrations de type ultrasoniques, appliquées au niveau de l'alimentation des produits en granules et/ou en poudre au dispositif mis en œuvre dans l'élaboration de ces produits pharmaceutiques de type gélule, comprimé, sachet, etc. Les vibrations de type ultrasoniques peuvent en particulier être appliquées au niveau de la trémie d'alimentation d'une géluleuse, d'une comprimeuse, d'une sacheteuse, etc.

Le dispositif pour le conditionnement de produits pharmaceutiques de type gélule, comprimé, sachet, etc., utilisé pour la mise en œuvre de l'invention

comprend un émetteur d'ultrasons, prévu au niveau du dispositif d'alimentation des produits en granules et/ou en poudre vers le dispositif élaborant ces produits pharmaceutiques.

L'émetteur d'ultrasons est de préférence prévu au niveau de la trémie d'alimentation d'un dispositif de type géluleuse, comprimeuse, sacheteuse ou similaires. L'émetteur d'ultrasons peut par exemple être plongé dans le granulé présent dans ou chargé à la trémie d'alimentation de machines à fabriquer des gélules, comprimés, sachets, etc.

Il a été constaté que l'application de vibrations ultrasoniques au niveau de l'alimentation des produits en granules et/ou en poudre engendre une amélioration surprenante de la vitesse d'écoulement et des propriétés rhéologiques du granulé et/ou de la poudre.

Sans vouloir limiter la portée de cette invention par une explication théorique quelconque, il semblerait que les vibrations transmises dans le granulé et/ou la poudre permettent à chaque particule de prendre une place minimale, rendant ainsi le granulé et/ou la poudre plus compacte. Comme les vibrations sont également transmises sur la trémie elle-même, le granulé et/ou la poudre n'adhère pas aux parois et on obtient ainsi un granulé/une poudre compacte avec de très bonnes propriétés rhéologiques, dans lequel/laquelle l'essentiel de l'air excédentaire a disparu.

Les vibrations ultrasoniques semblent en outre provoquer une accélération du mouvement des particules au niveau de l'embouchure de la trémie, ce qui engendre un écoulement accéléré du granulé ou de la poudre.

Il en résulte une production plus uniforme et une homogénéité plus grande, tant en ce qui concerne les teneurs en produits qu'en ce qui concerne la texture. On obtient donc une bien meilleure qualité des produits finis à la sortie des appareillages de fabrication.

En fonction des différentes formes galéniques préconisées, la technique offre encore d'autres avantages:

En ce qui concerne les gélules, étant donné que la poudre est plus compacte à la sortie de la trémie, il est possible d'utiliser un format plus petit des gélules, tout en obtenant une teneur uniforme en principe actif;

pour les sachets, le principal avantage réside dans la teneur uniforme en principes actifs;

quant au comprimés, l'élimination de l'excès d'air inclus dans les granules (qu'ils soient traités «à sec» ou «humides») évite les graves problèmes de fissuration et d'éclatement des comprimés résultant de l'air emprisonné dans les granules/les poudres lors de la compression. Les comprimés obtenus sont plus solides et se brisent moins facilement.

Selon une particularité supplémentaire de l'invention, les vibrations ultrasoniques mises en œuvre ont de préférence une fréquence entre 15 et 50 kHz., plus particulièrement une fréquence de 25/40 kHz.

Les puissances mises en œuvre dépendent bien entendu de la dimension des équipement et des débits d'alimentation utilisés pour la production de

produits pharmaceutiques selon la présente invention. En général les générateurs d'ultrasons utilisés auront une puissance nominale de 1000 à 16 000 Watt. Les oscillateurs peuvent être de n'importe quel type commercialement disponible sur le marché, notamment du type submersible ou à plaques oscillantes.

D'autres particularités, caractéristiques et modes de réalisation préférés de l'invention seront mis en évidence au moyen des exemples décrits ci-dessous. Il est toutefois à noter que les détails spécifiques énoncés dans ces exemples ne constituent aucunement une limitation de la portée de l'invention telle que définie aux revendications qui suivent.

Exemple 1

Production de comprimés

Cet exemple décrit la production de comprimés POLYFLAM (POLYFLAM est une marque enregistrée appartenant à la firme Farmabel S.A.), de composition:

Natriumdiclofenac, Lactos, Anhydr., Cellulos. Microcrist., Amyl. Maydis, Magnes. Stearas, Silic. Dioxyd. Colloid., Cellulos. Acetylphthalas, Marcogol 6000, 01. Ricini, Opaspray Orange.

Tous les ingrédients du noyau sont passés à faible vitesse à travers un tamis n° 24 228; le diclofenac sodique et l'amidon de maïs sont mélangés dans un mélangeur biconique pendant 10 minutes. Ensuite on ajoute le lactose anhydre et la cellulose microcristalline au mélange obtenu et on mélange pendant 10 minutes. On ajoute le stéarate de magnésium et le dioxyde silicique colloïdal au mélange obtenu et on mélange pendant encore 10 minutes. C'est ce qu'on appelle «la granulation sèche». La poudre ainsi obtenue est introduite dans la trémie d'une comprimeuse de type B4 (25 stations) mise sur le marché par la société Monesty. On insère l'oscillateur submersible à ultrasons d'un appareillage de type ELMA MC dans cette poudre dans la trémie et on commence la fabrication de comprimés après 10 minutes. On obtient des comprimés de qualité exceptionnelle, possédant des caractéristiques de solidité nettement supérieures à celles obtenues selon l'état de la technique.

Exemple 2

Production de capsules

Cet exemple décrit la production de capsules DOXYTAB (DOXYTAB est une marque enregistrée appartenant à la firme Farmabel S.A.), de composition:

Doxycyclini hydrochloridum, Lactosum, Talcum.

La nature et le poids de chaque composant sont contrôlés avec précision. On pré-mélange l'hydrochlorure de doxycycline et le lactose dans un tamis vibrant; ensuite on introduit le tout dans un autogranulateur de type MP4 de la société Aeromatic AG, et on granule avec de l'eau. On retire le granulé et on le sèche à 40°C jusqu'à obtenir une humidité résiduelle d'une valeur de 1%. On ajoute le talc et on mélange. On passe ensuite le granulé dans un tamis vibrant. Le granulé ainsi obtenu est introduit

dans la trémie d'alimentation d'une géluleuse de type AZ30, mise sur le marché par la société Zana-si. On introduit l'instrument à ondes ultrasons (oscillateur submersible d'un appareil ELMA MC) dans le granulé et on laisse agir les ultrasons pendant 10 minutes. Ensuite on met en route la géluleuse et on répartit le granulé dans les capsules. On obtient des capsules ayant un remplissage extrêmement dense, d'une homogénéité remarquable.

Exemple 3

Production de sachets

Cet exemple décrit la production de sachets DOXYTAB (DOXYTAB est une marque enregistrée appartenant à la firme Farmabel S.A, de composition:

Doxycyclini monohydratum, Marcrogoli-stearas 2000, Natrii-Carmellosum, «tutti frutti» aroma, sweet dry synthet. aroma, Erythrosine, saccharose. Le saccharose est passé au moyen d'un tamis oscillant.

On pré-mélange la doxycycline, le saccharose et l'arôme «sweet dry» au moyen d'un tamis vibrant. On introduit ensuite le tout dans un granulateur de type MP4 vendu par la société Aeromatic AG. On prépare la solution granulante en dissolvant le polyoxyéthylène, le saccharose et le colorant dans de l'eau préchauffée à 50°C. Après la granulation on sèche le granulé pendant 30 minutes dans un séchoir à 45°C. On tamise sur un filet muni de mailles de 0,95 mm de côté et on sèche à nouveau pendant 90 minutes. Le granulé est ensuite pré-mélangé avec le carboxyméthylcellulose sodique et l'arôme «tutti frutti», et on tamise à nouveau. On mélange dans un tamiseur en V pendant 10 minutes. Le granulé ainsi obtenu est introduit dans la trémie d'alimentation d'une sacheteuse de type BMX/A-BMX de la société Bosch. L'outil à ondes ultrasoniques (oscillateur submersible d'un appareil ELMA MC) est introduit dans le granulé et maintenu en fonctionnement pendant 10 minutes. Le granulé est ensuite réparti dans les sachets. On obtient des sachets d'une homogénéité exceptionnelle.

Revendications

1. Procédé pour le conditionnement de produits pharmaceutiques particulièrement sous forme de gélules, comprimés, pastilles, dragées, pilules, granules ou sachets à partir de produits en granules et/ou en poudre, caractérisé en ce que des vibrations de type ultrasoniques sont appliquées au niveau de l'alimentation des produits en granules et/ou en poudre au dispositif mis en œuvre dans l'élaboration de ces produits pharmaceutiques.

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que les vibrations de type ultrasoniques sont appliquées au niveau de la trémie d'alimentation d'un dispositif de type géluleuse.

3. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que les vibrations de type ultrasoniques sont appliquées au niveau de la trémie d'alimentation d'un dispositif de type comprimeuse.

4. Procédé selon la revendication 1, caractérisé

en ce que les vibrations de type ultrasoniques sont appliquées au niveau de la trémie d'alimentation d'un dispositif de type sacheteuse.

5. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que les vibrations ultrasoniques ont une fréquence entre 15 et 50 kHz.

5

6. Produit pharmaceutique obtenu au moyen d'un procédé selon l'une des revendications précédentes.

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65

crodriguez

DE000010036400A1.pdf
02/03/06 12:44 PM



⑮ **BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT**

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 100 36 400 A 1**

⑳ Aktenzeichen: 100 36 400.4
㉔ Anmeldetag: 26. 7. 2000
㉕ Offenlegungstag: 6. 6. 2002

㉙ Int. Cl.⁷:
B 32 B 27/36
C 08 J 5/18
C 08 K 7/18
B 29 D 7/01
B 29 C 55/12
B 29 C 47/06

DE 100 36 400 A 1

㉙ Anmelder:
Mitsubishi Polyester Film GmbH, 65203
Wiesbaden, DE

㉚ Vertreter:
Zounek, N., Dipl.-Ing., Pat.-Anw., 65203 Wiesbaden

㉛ Erfinder:
Peiffer, Herbert, 55126 Mainz, DE; Petersen, Klaus,
65207 Wiesbaden, DE; Davis, Richard Lee, 65187
Wiesbaden, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

㉜ Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie

㉝ Die Erfindung betrifft eine weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie mit mindestens einer Basisschicht B, die sich auf Grund ihrer speziellen mechanischen Eigenschaften sehr gut als Deckelfolie, insbesondere als Deckelfolie für Joghurtbecher, eignet. Die Erfindung beinhaltet weiterhin ein Verfahren für die Herstellung der Folie und ihre Verwendung.

DE 100 36 400 A 1

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft eine weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie mit mindestens einer Basisschicht B, die sich auf Grund ihrer speziellen mechanischen Eigenschaften sehr gut als Deckelfolie, insbesondere als Deckelfolie für

5 Jogurtbecher eignet. Die Erfindung beinhaltet weiterhin ein Verfahren für die Herstellung der Folie und ihre Verwendung.

[0002] Eine bekannte Anwendung von biaxial orientierten Polyesterfolien sind Deckel, z. B. Deckel für Jogurtbecher. Sie werden dort alternativ zu Aluminiumfolien eingesetzt. Bei Deckeln aus Polyesterfolie wird derzeit im Wesentlichen zwischen den zwei im Folgenden näher beschriebenen Ausführungsformen unterschieden:

10 Zum einen Deckel, die nur aus Polyesterfolie bestehen.

[0003] Derartige Deckel werden auf der Oberseite der Folie (= Außenseite des Deckels) bedruckt und auf der Unterseite der Folie (= Innenseite des Deckels) mit einem Lack versehen, mit dem die Deckel auf den Becher geklebt werden. Zur Verbesserung der Haltbarkeit des Yogurts müssen sowohl der Becher als auch der Deckel genügend Lichtschutz aufweisen. Dies geschieht in der Regel durch Einfärben der Materialien für den Deckel und für den Becher mit Titandioxid

15 oder mit anderen geeigneten Pigmenten oder Farbstoffen. Eine weitere, wichtige Forderung an die Deckelfolie ist, dass sie auf Grund ihrer ausgewählten mechanischen Eigenschaften beim Abziehen vom Becher nicht delaminiert. Die erforderlichen mechanischen Eigenschaften erhält die Folie durch die biaxiale Streckung und durch eine entsprechend hohe Dicke. Die mechanischen Eigenschaften des Deckels (Steifigkeit, Durchstoßfestigkeit, Weiterreißfestigkeit, etc.) verbessern sich mehr als proportional mit der Dicke der Folie. Für die Deckelanwendung bei Jogurt haben sich Polyesterfolien mit einer Dicke von 30 bis 100 µm bewährt. Andererseits kann die Dicke der Folie nicht beliebig gesteigert werden, da mit der Dicke die Materialkosten anwachsen und die Siegeltackzeiten, d. h., die Siegeltackzeiten wachsen quadratisch mit der Dicke, was aus wirtschaftlicher Sicht unerwünscht ist.

[0004] Neben den o. g. Deckeln, die nur aus Polyesterfolie bestehen, sind auch Deckel, die aus einem Verbund aus transparenter, biaxial orientierter Polyesterfolie und Papier bestehen, bekannt. Beide Materialien werden mittels geeignetem Kleber kaschiert und zu Deckeln verarbeitet. Die erforderliche Steifigkeit des Deckels ergibt sich aus der Kaschierung von Polyesterfolie und Papier zu einem dicken Laminat. Bei dieser Variante wird in der Regel die Seite der Polyesterfolie, die zum Papier hin zu liegen kommt, mit Aluminium metallisiert. Hierdurch bleibt der metallene Charakter des Deckels (im Vergleich zum Deckel aus Aluminiumfolie) erhalten. Die andere Seite der Polyesterfolie (Außenseite der Folie, zeigt vom Verbund weg) wird mit einem geeigneten Kleber beschichtet, mit dem der Deckel dann auf den Becher

30 aus Polypropylen oder Polystyrol geklebt wird.

[0005] Die Vorteile von Deckeln, die nur aus Polyesterfolie (ohne Papier) bestehen, liegen auf der Hand:

– Der Deckel aus Polyesterfolie hat eine glatte, hoch glänzende Oberfläche, die eine exzellente Farbwiedergabe garantiert und dadurch optisch sehr ansprechend wirkt.

35 – Die Folie hat im Vergleich zu konventionellem Material eine bis zu 700% höhere Durchstoßfestigkeit, was einen wesentlich höheren Produktschutz zur Folge hat.

– Der Deckel ist leicht zu öffnen, ohne dass Fragmente des Deckels am Becher hängen bleiben, wie es bei konventionellen Materialien beobachtet wird. Diese Eigenschaft wird insbesondere vom Verbraucher geschätzt.

40 – Die vollständige Trennung von Becher und Deckel ist von großem Vorteil für die Rezyklierbarkeit der beiden Materialien. Die Deckelfolie besteht aus thermoplastischem Polyester, der exzellent rezyklierbar ist. Das Produkt ist damit zugleich umweltsicher und umweltfreundlich.

– Weiterhin ist die Polyesterfolie für die Deckelanwendung infolge ihrer hohen Steifigkeit und ihrem guten Gleitvermögen (die Folie weist entsprechend dem Anforderungsprofil niedrige Reibkoeffizienten auf) hervorragend verarbeitbar.

45 – Außerdem ist der Deckel absolut metallfrei. Dies garantiert eine sehr hohe Sicherheit bei der Metalldektierung, die bei der Herstellung von Lebensmitteln immer häufiger angewendet wird. Mit der Methode kann damit der Anteil an dem im Füllgut enthaltenen metallischen Bestandteilen mit hoher Genauigkeit bestimmt werden.

[0006] Verarbeiter verwenden bestimmte Kriterien für die Weiterverarbeitung der Folien zu Joghurtbechern. Die bei der Herstellung von Joghurtdeckeln üblicher Weise angewandten Größen sind der sogenannte R-Wert und das sogenannte e_{\max} -Verhältnis. Der R-Wert kann als Maß für die Orientierung angegeben werden und wird direkt nach der Herstellung der Folie in der Mitte der Folienbahn gemessen. Das e_{\max} -Verhältnis beschreibt die Orientierungsverteilung über die Folienbahnbreite (das sogenannte BOW) und wird ebenfalls direkt nach der Herstellung der Folie gemessen, jedoch in diskreten Abständen über die gesamte Breite der Folienbahn. Bei transparenten Folien werden daneben noch die üblichen Orientierungsmaße, wie die planare Orientierung Δp oder die mittlere Orientierung n_{av} verwendet. Bevor die Folien verarbeitet werden, werden die R-Werte und das e_{\max} -Verhältnis gemessen. Bei transparenten Folien liegen die Werte für den R-Wert in einem Bereich von 42 bis 48 und für das e_{\max} -Verhältnis in einem Bereich von 2.2 bis 2.8. Untersuchungen an weißen Folien haben gezeigt, dass diese Werte nicht von transparenten Folie auf die vorliegenden weißen Folien übertragen werden können. Werden für weiße Folie obige angegebenen Werte eingehalten, so führt dies im

60 allgemeinen zu einer Delaminierung der Folie. Die Folie delaminiert in sich, sie reißt in Dickenrichtung ein, der Riß zerstört die Folie und die Folie reißt weiter ein.

[0007] Die oben genannten Eigenschaften werden von den nach dem Stand der Technik bekannten Folien nicht in ihrer Gesamtheit erreicht. So beschreibt beispielsweise die EP-A 0 605 130 eine mehrschichtige Folie für die Deckelanwendung, die mindestens eine opake Schicht aus kristallinem Polyester und mindestens eine transparente Schicht aus kristallinem Polyester enthält. Weiterhin wird die Folie durch einen Deformations-Index beschrieben, der größer/gleich als 2.5% sein soll. Daneben kann die Folie mit bestimmten Substanzen beschichtet werden, womit die Adhäsion zu Druckfarben und/oder Tinten verbessert wird. Als geeignete Substanzen werden bestimmte Acrylate aufgeführt. Über die R-Werte und das e_{\max} -Verhältnis der Folie gibt die Schrift keine Auskunft. Eine nach der EP-A 0 605 130 (Beispiel 1,

Längsstrecktemperatur ca. 80°C, Streckverhältnis bei der Längsstreckung 3.3) nachgestellte Folie delaminierte, außerdem zeigte sie ein schlechtes Verarbeitungsverhalten, da sich die Folie nach dem Ausstanzen zu den Deckeln curlte. Die von der Anmelderin gemessenen R-Werte und das e_{\max} -Verhältnis dieser Folie liegen außerhalb dem in dieser Schrift beanspruchten Bereich.

[0008] Aus wirtschaftlicher Sicht ist es notwendig, die Kosten für die Herstellung von Deckelfolien permanent zu senken. Ein wesentlicher Hebel hierfür ist die Dicke der Folie. Eine geringere Dicke des Deckels geht direkt einher mit einer Senkung der Materialkosten und führt auf Grund niedriger Siegeltackzeiten zu höheren Abfüllgeschwindigkeiten. Wie oben bereits ausgeführt, kann aber die Dicke des Deckels nicht beliebig verringert werden, da dies zu Verarbeitungsproblemen und zu Problemen beim Abziehen des Deckels vom Becher führt. Deckel aus Polyesterfolie mit zu geringer Dicke neigen zum Einreißen und zum Delaminieren. Eine Produktsicherheit und der Vorteil der 100%igen Trennung von Deckel und Becher ist dann nicht mehr gegeben. Die Gefahr des Einreißen und der Delaminierung des Deckels wird desto größer, umso mehr Pigmente in die Polyesterfolie eingearbeitet werden. Pigmente bilden in der Folie Schwachstellen, an denen die Zerstörung der Folien beim Abziehen vom Becher beginnt.

[0009] Aufgabe der Erfindung war es daher, eine weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie für die Deckel-Anwendung bereitzustellen, die sich gegenüber den für diesen Einsatzzweck bekannten Polyesterfolien durch verbesserte Eigenschaften auszeichnen. Insbesondere sollte die neue Polyesterfolie durch folgende Eigenschaftskombination gekennzeichnet sein

- sehr gute Verarbeitbarkeit
- sehr gutes Abziehverhalten vom Becher, insbesondere
- keine Delaminierung und
- kein Ein- und Weiterreißen
- wirtschaftliche Herstellbarkeit.

[0010] Versuche, eine herkömmliche transparente Folie, die sich nach Verarbeiterangaben für die Anwendung als Deckelfolie eignet, mit Pigmenten zu versehen, scheiterten. Die Folie delaminierte beim Abziehen vom Becher.

[0011] Gelöst wird die Aufgabe durch eine weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie mit mindestens einer Basisschicht B, die dadurch gekennzeichnet ist, dass

- der R-Wert kleiner als 45 daN/mm² ist und
- das e_{\max} -Verhältnis kleiner als 2.5 ist.

[0012] Der R Wert wird direkt nach der Herstellung der Folie in der Mitte der Folienbahn gemessen. Das e_{\max} -Verhältnis wird ebenfalls direkt nach der Herstellung der Folie gemessen, jedoch in diskreten Abständen über die gesamte Breite der Folienbahn.

[0013] Erfindungsgemäß ist die Folie durch einen niedrigen R-Wert gekennzeichnet. Der R-Wert ist ein Maß für die Orientierung der Folie und ersetzt im Fall der vorliegenden Erfindung die sonst üblichen Orientierungsmaße A_n , n_{av} oder A_p . Diese können nur bei einer transparenten Folie gemessen werden, nicht aber bei dieser weißen Folie.

[0014] Der R-Wert der Folie wird in der Mitte der Folienbahn unter einem Winkel von 45° zur Maschinenrichtung (MD-Richtung) gemessen und zwar einmal rechts zur MD-Richtung und das andere Mal links zur Maschinenrichtung (siehe Messvorschrift auf Seite 16). Bei dieser Vorschrift wird berücksichtigt (vgl. Fig. 1), dass bei Jogurtdeckeln die Folie üblicher Weise unter einem Winkel von 45° zur Maschinenrichtung vom Becher abgezogen wird.

[0015] Beim Herstellungsprozess des Deckels (Lackieren, Bedrucken, Stanzen) wird von der Rolle aus gearbeitet. Die Rollenrichtung (= Bahnrichtung) der Folie entspricht dabei der Maschinenrichtung MD. Die Folienbahn wird dabei derart bedruckt, dass die auszustanzenden Deckel entweder exakt in Maschinenrichtung (MD) oder exakt quer zur Maschinenrichtung (TD) liegen. Daraus folgt, dass die Abziehrichtung des Deckels immer mit dem 45° Winkel zur Maschinenrichtung (MD) zusammenfällt. Aus diesem Grunde ist es daher erforderlich, den R-Wert unter einem Winkel von 45° zur Maschinenrichtung zu bestimmen.

[0016] Es wurde gefunden, dass das Aufreiß- und Weiterreißverhalten des Deckels umso günstiger ist, je kleiner der R-Wert der Folie ist. Außerdem ist dann die Tendenz der Folie zum Delaminieren sehr gering. Den Untersuchungen zur Folge beträgt der R-Wert der erfindungsgemäßen Folie weniger als 45 daN/mm², bevorzugt weniger als 42 daN/mm² und besonders bevorzugt weniger 40 daN/mm². Es wurde gefunden, dass im anderen Fall (R-Wert größer als 45 daN/mm²) die Folie insbesondere anfällig gegenüber Einreißen und Delaminierung ist. Dieser Nachteil muss dann über eine beträchtlich größere Dicke der Folie wettgemacht werden.

[0017] Weiterhin ist die erfindungsgemäße Folie durch ein niedriges e_{\max} -Verhältnis gekennzeichnet. Das e_{\max} -Verhältnis wird in definierten Abständen über die gesamte Bahnbreite der Maschinenrolle gemessen. Wie bei der Messung des R-Wertes geschieht dies unter einem Winkel von 45° zur Maschinenrichtung (MD-Richtung) und zwar einmal rechts zur MD-Richtung und das andere Mal links zur Maschinenrichtung (siehe Messvorschrift auf Seite 16). In der Folienbahnmitte ist das e_{\max} -Verhältnis nahezu eins und vergrößert sich in der Regel umso mehr, je näher man zu den Folienrändern gelangt. Das e_{\max} -Verhältnis beschreibt die Eigenschaften der Folie über die Breite der Rolle, insbesondere die Änderung der Eigenschaften gegenüber der Mitte der Folienbahn. Nach den vorliegenden Untersuchungen sind die anwendungstechnischen Voraussetzungen umso besser, je geringer das e_{\max} -Verhältnis ist.

[0018] Das e_{\max} -Verhältnis der erfindungsgemäßen Folie beträgt weniger als 2.5, bevorzugt weniger als 2.2 und besonders bevorzugt weniger als 2.0. Es wurde gefunden, dass im anderen Fall (e_{\max} -Verhältnis ist größer als 2.5) die Folie anfällig gegenüber Einreißen und Delaminierung ist. Dieser Nachteil muss dann über eine größere Dicke der Folie wettgemacht werden, was aber unwirtschaftlich ist und außerdem ökologisch nicht vertretbar ist.

[0019] Die Folie ist in der Regel einschichtig aufgebaut. Sie kann daneben aber auch mehrschichtig aufgebaut sein. Für diesen Fall hat es sich als günstig erwiesen, den Schichtaufbau der Folie symmetrisch zu gestalten. Vorteilhafte Ausführ-

rungsformen mehrschichtiger Folien sind beispielsweise ABA oder ACBCA, wobei unter A die äußeren Deckschichten, unter C die Zwischenschichten und unter B die Basisschicht verstanden wird.

[0020] Die Basisschicht B der Folie besteht bevorzugt zu mindestens 90 Gew.-% aus einem thermoplastischen Polyester. Dafür geeignet sind Polyester aus Ethylenglykol und Terephthalsäure (= Polyethylterephthalat, PET), aus Ethylenglykol und Naphthalin-2,6-dicarbonsäure (= Polyethylen-2,6-naphthalat, PEN), aus 1,4-Bis-hydroxymethylcyclohexan und Terephthalsäure [= Poly(1,4-cyclohexandimethylterephthalat, PCDT)] sowie aus Ethylenglykol, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure und Biphenyl-4,4'-dicarbonsäure (= Polyethylen-2,6-naphthalatbibenzoat, PENBB). Besonders bevorzugt sind Polyester, die zu mindestens 90 Mol.-%, bevorzugt mindestens 95 Mol.-%, aus Ethylenglykol und Terephthalsäure-Einheiten oder aus Ethylenglykol und Naphthalin-2,6-dicarbonsäure-Einheiten bestehen. Die restlichen Monomereinheiten stammen aus anderen aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Diolen bzw. Dicarbonsäuren, wie sie auch in der Schicht A (oder der Schicht C) vorkommen können.

[0021] Geeignete andere aliphatische Dirole sind beispielsweise Diethylenglykol, Triethylenglykol, aliphatische Glykole der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2)_n-\text{OH}$, wobei n eine ganze Zahl von 3 bis 6 darstellt (insbesondere Propan-1,3-diol, Butan-1,4-diol, Pentan-1,5-diol und Hexan-1,6-diol) oder verzweigte aliphatische Glykole mit bis zu 6 Kohlenstoff-Atomen. Von den cycloaliphatischen Diolen sind Cyclohexandiole (insbesondere Cyclohexan-1,4-diol) zu nennen. Geeignete andere aromatische Dirole entsprechen beispielsweise der Formel $\text{HO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{X}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OH}$, wobei X für $-\text{CH}_2-$, $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$, $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$, $-\text{O}-$, $-\text{S}-$ oder $-\text{SO}_2-$ steht. Daneben sind auch Bisphenole der Formel $\text{HO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OH}$ gut geeignet.

[0022] Andere aromatische Dicarbonsäuren sind bevorzugt Benzoldicarbonsäuren, Naphtalindicarbonsäuren (beispielsweise Naphthalin-1,4- oder 1,6-dicarbonsäure), Biphenyl-x,x'-dicarbonsäuren (insbesondere Biphenyl-4,4'-dicarbonsäure), Diphenylacetylen-x,x'-dicarbonsäuren (insbesondere Diphenylacetylen-4,4'-dicarbonsäure) oder Stilben-x,x'-dicarbonsäuren. Von den cycloaliphatischen Dicarbonsäuren sind Cyclohexandicarbonsäuren (insbesondere Cyclohexan-1,4-dicarbonsäure) zu nennen. Von den aliphatischen Dicarbonsäuren sind die (C_3-C_{19}) Alkandisäuren besonders geeignet, wobei der Alkanteil geradkettig oder verzweigt sein kann.

[0023] Die Herstellung der Polyester kann z. B. nach dem Umesterungsverfahren erfolgen. Dabei geht man von Dicarbonsäureestern und Diolen aus, die mit den üblichen Umesterungskatalysatoren, wie Zink-, Calcium-, Lithium-, Magnesium- und Mangan-Salzen, umgesetzt werden. Die Zwischenprodukte werden dann in Gegenwart allgemein üblicher Polykondensationskatalysatoren, wie Antimontrioxid oder Titan-Salzen, polykondensiert. Die Herstellung kann ebenso gut nach dem Direktveresterungsverfahren in Gegenwart von Polykondensationskatalysatoren erfolgen. Dabei geht man direkt von den Dicarbonsäuren und den Diolen aus.

[0024] Für eventuell vorhandene Deckschichten A oder für eventuell vorhandene Zwischenschichten C können prinzipiell die gleichen Polymere verwendet werden, wie zuvor für die Basisschicht B beschrieben wurde.

[0025] Zur Erzielung der vorgenannten Eigenschaften, insbesondere der niedrigen Transparenz und des gewünschten Weißgrades der Folie, werden zweckmäßigerweise in die Basisschicht B, eventuell aber auch in die vorhandenen anderen Schichten A und C die notwendigen Pigmente eingearbeitet. Hierbei hat es sich als günstig erwiesen, Titandioxid, Calciumcarbonat, Bariumsulfat, Zinksulfid oder Zinkoxid in einer geeigneten Größe und in einer geeigneten Konzentration zu verwenden. Bevorzugt wird Titandioxid verwendet. Das Titandioxid kann sowohl vom Rutil-Typ als auch vom Anatas-Typ sein. Die Korngröße des Titandioxids liegt zwischen 0.05 und 0.5 μm , bevorzugt zwischen 0.1 und 0.3 μm . Das Calciumcarbonat hat eine Korngröße zwischen 0.1 und 2.5 μm , bevorzugt ist jedoch eine Korngröße von 0.2 bis 2.0 μm . Das Bariumsulfat weist eine Korngröße von 0.3 bis 0.9 μm , vorzugsweise eine Korngröße von 0.4 bis 0.7 μm auf. Die Folie erhält durch die eingearbeiteten Pigmente ein brillantes weißes Aussehen. Um zu dem gewünschten Weißgrad (> 60) und zu der gewünschten niedrigen Transparenz (> 60) zu gelangen, muss die Basisschicht hochgefüllt sein. Die Partikelkonzentration zur Erzielung der gewünschten niedrigen Transparenz liegt bei ≥ 3 Gew.-%, jedoch ≤ 50 Gew.-%, vorzugsweise bei ≥ 4 Gew.-%, jedoch ≤ 45 Gew.-% und ganz bevorzugt ≥ 5 Gew.-%, jedoch ≤ 40 Gew.-%, bezogen auf die Basisschicht der Folie.

[0026] Zu einer weiteren Steigerung des Weißgrades werden geeignete optische Aufheller der Basisschicht und/oder den anderen Schichten zugesetzt. Geeignete optische Aufheller sind beispielsweise [®]Hostalux KS oder [®]Eastobrite OB-1.

[0027] Die Basisschicht B kann daneben zusätzlich übliche Additive, wie bspw. Stabilisatoren und/oder Antiblockmittel enthalten. Vorhandene weitere Schichten A und C enthalten zweckmäßiger Weise zusätzlich übliche Additive, wie bspw. Stabilisatoren und/oder Antiblockmittel. Sie werden üblicher Weise dem Polymer bzw. der Polymermischung bereits vor dem Aufschmelzen zugesetzt. Als Stabilisatoren werden beispielsweise Phosphorverbindungen, wie Phosphorsäure oder Phosphorsäureester, eingesetzt.

[0028] Typische Antiblockmittel (in diesem Zusammenhang auch als Pigmente bezeichnet) sind anorganische und/oder organische Partikel, beispielsweise Calciumcarbonat, amorphe Kieselsäure, Talk, Magnesiumcarbonat, Bariumcarbonat, Calciumsulfat, Bariumsulfat, Lithiumphosphat, Calciumphosphat, Magnesiumphosphat, Aluminiumoxid, LiF, Calcium-, Barium-, Zink- oder Mangan-Salze der eingesetzten Dicarbonsäuren, Titandioxid, Kaolin oder vernetzte Polystyrol- oder Acrylat-Partikel.

[0029] Als Antiblockmittel können auch Mischungen von zwei und mehreren verschiedenen Antiblockmitteln oder Mischungen von Antiblockmitteln gleicher Zusammensetzung, aber unterschiedlicher Partikelgröße gewählt werden. Die Antiblockmittel und die Pigmente für die Erzielung des gewünschten Weißgrades und der niedrigeren Transparenz der Folie können den einzelnen Schichten in den jeweils vorteilhaften Konzentrationen, z. B. als glykolische Dispersion während der Polykondensation oder über Masterbatche bei der Extrusion zugegeben werden.

[0030] Die Gesamtdicke der erfindungsgemäßen Polyesterfolie kann innerhalb bestimmter Grenzen variieren. Sie beträgt 10 bis 150 μm , insbesondere 15 bis 125 μm , vorzugsweise 20 bis 100 μm , wobei die Basisschicht B einen Anteil von vorzugsweise 40 bis 100% an der Gesamtdicke hat.

[0031] Die Polymere für die Basisschicht B und für die weiteren Schichten A und C werden getrennten Extrudern zugeführt. Etwa vorhandene Fremdkörper oder Verunreinigungen lassen sich aus der Polymerschmelze vor der Extrusion

abfiltrieren. Im Falle einer einschichtigen Folie wird die Schmelze in einer Monodüse zu einem flachen Schmelzefilm ausgeformt. Bei einer mehrschichtigen Folie werden die Schmelzen in einer Mehrschichtdüse zu flachen Schmelzefilmen ausgeformt und übereinander geschichtet. Anschließend wird der Monofilm oder der Mehrschichtfilm mit Hilfe einer Kühlwalze und gegebenenfalls weiteren Walzen abgezogen und verfestigt.

[0032] Die Erfindung betrifft weiterhin ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Polyesterfolie nach dem an sich bekannten Extrusions- oder Koextrusionsverfahren. 5

[0033] Im Rahmen dieses Verfahrens wird so vorgegangen, dass die Schmelze/den einzelnen Schichten der Folie entsprechenden Schmelzen durch eine Flachdüse extrudiert/koextrudiert wird/werden, die so erhaltene Folie zur Verfestigung auf einer oder mehreren Walze/n abgezogen wird, die Folie anschließend biaxial gestreckt (orientiert), die biaxial gestreckte Folie thermofixiert und gegebenenfalls an der zur Behandlung vorgesehenen Oberflächenschicht corona- oder flammbehandelt wird. 10

[0034] Die biaxiale Streckung (Orientierung) wird im Allgemeinen aufeinander folgend durchgeführt, wobei die aufeinander folgende biaxiale Streckung, bei der zuerst längs (in Maschinenrichtung) und dann quer (senkrecht zur Maschinenrichtung) gestreckt wird, bevorzugt ist.

[0035] Zunächst wird wie beim Extrusionsverfahren/Koextrusionsverfahren üblich, das Polymere bzw. die Polymermischung der einzelnen Schichten in einem Extruder komprimiert und verflüssigt, wobei die gegebenenfalls zugesetzten Additive bereits im Polymer bzw. in der Polymermischung enthalten sein können. Die Schmelzen werden dann gleichzeitig durch eine Flachdüse (Breitschlitzdüse) gepresst, und die ausgepresste mehrschichtige Folie wird auf einer oder mehreren Abzugswalzen abgezogen, wobei sie abkühlt und sich verfestigt. 15

[0036] Die biaxiale Verstreckung wird im Allgemeinen sequenziell durchgeführt. Dabei wird vorzugsweise erst in Längsrichtung (d. h. in Maschinenrichtung, = MD-Richtung) und anschließend in Querrichtung (d. h. senkrecht zur Maschinenrichtung, = TD-Richtung) verstreckt. Dies führt zu einer Orientierung der Molekülketten. Das Verstrecken in Längsrichtung lässt sich mit Hilfe zweier entsprechend dem angestrebten Streckverhältnis verschieden schnell laufenden Walzen durchführen. Zum Querverstrecken benutzt man allgemein einen entsprechenden Kluppenrahmen. 20

[0037] Die Temperatur, bei der die Verstreckung durchgeführt wird, kann in einem relativ großen Bereich variieren und richtet sich nach den gewünschten Eigenschaften der Folie. Im Allgemeinen wird die Längsstreckung bei 80 bis 140°C und die Querstreckung bei 90 bis 150°C durchgeführt. Das Längsstreckverhältnis liegt allgemein im Bereich von 2.0 : 1 bis 6 : 1, bevorzugt von 2.5 : 1 bis 5.5 : 1. Das Querstreckverhältnis liegt allgemein im Bereich von 3.0 : 1 bis 5.0 : 1, bevorzugt von 3.5 : 1 bis 4.5 : 1. Vor der Querstreckung kann man eine oder beide Oberfläche(n) der Folie nach den bekannten Verfahren in-line beschichten. Die In-Line-Beschichtung kann beispielsweise zu einer verbesserten Haftung der Metallschicht oder einer eventuell aufgetragenen Druckfarbe, aber auch zur Verbesserung des antistatischen Verhaltens oder des Verarbeitungsverhaltens dienen. 25

[0038] Für die Herstellung einer Folie mit sehr gutem Abzieh- und Delaminierungsverhalten (die Folie darf beim Abziehen nicht Delaminieren) ist es erfindungswesentlich, daß der R-Wert kleiner als 45 daN/mm² und das e_{\max} -Verhältnis kleiner als 2.5 ist. In diesem Fall ist die Festigkeit der Folie in Dickenrichtung so groß, dass beim Abziehen des Deckels vom Becher die Folie definitiv nicht delaminiert, bzw. nicht einreißt oder weiterreißt. 30

[0039] Es hat sich herausgestellt, dass die wesentlichen Einflussgrößen auf den R-Wert und das e_{\max} -Verhältnis die Verfahrensparameter in der Längsstreckung und in der Querstreckung sind, sowie die Standard-Viskosität (SV-Wert bevorzugt im Bereich von 700 bis 900) des verwendeten Rohstoffes. Zu den Verfahrensparametern gehören insbesondere die Streckverhältnisse in Längs- und in Querrichtung (λ_{MD} und λ_{TD}), die Strecktemperaturen in Längs- und in Querrichtung (T_{MD} und T_{TD}) und die Folienbahngeschwindigkeit. 40

[0040] Erhält man beispielsweise auf einer Folienanlage R-Werte und e_{\max} -Verhältnisse, die oberhalb der erfindungsgemäßen Werte liegen, so können erfindungsgemäße Folien hergestellt werden, indem man in der Längsstreckung und in der Querstreckung die Temperaturen erhöht und/oder in der Längsstreckung und in der Querstreckung die Streckverhältnisse erniedrigt. Übliche Werte für die genannten Parameter bei nicht erfindungsgemäßen Folien sind z. B. 45

	Längsstreckung	Querstreckung
Strecktemperaturen	100 bis 118 °C	100 bis 120 °C
Streckverhältnisse	4.2 bis 5.0	4.1 bis 5.0

[0041] Bei den erfindungsgemäßen Folien liegen die Temperaturen und Streckverhältnisse dagegen innerhalb von Bereichen, wie sie die untenstehende Tabelle wiedergibt. 50

	Längsstreckung	Querstreckung
Strecktemperaturen	120 bis 135 °C	120 bis 140 °C
Streckverhältnisse	2.5 bis 4.0	3.5 bis 4.0

[0042] Ein weiteres Absenken des Streckverhältnisses ist nachteilig, da sich in der Folie Defekte zeigen, die unerwünscht sind. Wird beispielsweise das Längsstreckverhältnis unterhalb einem Wert von 2.5 abgesenkt, so erhält man in der Folie Querschläge, die man z. B. nach dem Metallisieren der Folie deutlich in der Metallschicht sieht. 65

[0043] Erhält man beispielsweise mit einer Folienproduktionsmaschine einen R-Wert von 50 daN/mm² und ein e_{\max}

von 3.0 mit dem Parametersatz $\lambda_{MD} = 4.5$ und $\lambda_{TD} = 4.2$, den Strecktemperaturen in Längs- und in Querrichtung $T_{MD} = 115^\circ\text{C}$ und $T_{TD} = 125^\circ\text{C}$, so erhält man durch Erhöhung der Längsstrecktemperatur auf $T_{MD} = 125^\circ\text{C}$ oder durch Erhöhung der Querstrecktemperatur auf $T_{TD} = 135^\circ\text{C}$ oder durch Absenkung des Längsstreckverhältnisses auf $\lambda_{MD} = 3.8$ oder durch Absenkung des Querstreckverhältnisses auf $\lambda_{TD} = 3.6$ ein R-Wert von 38. Überraschenderweise hat sich dabei herausgestellt, dass durch diese Maßnahmen auch das e_{max} -Verhältnis in den erfindungsgemäßen Bereich gelangt ($e_{max} = 1.5$). Die Folienbahngeschwindigkeit betrug hierbei 140 m/m in. Die angegebenen Temperaturen beziehen sich bei der Längsstreckung auf die jeweiligen Walzentemperaturen und bei der Querstreckung auf die Folientemperaturen, die mittels IR (infrarot) gemessen wurden.

[0044] Bei der nachfolgenden Thermofixierung wird die Folie etwa 0.1 bis 10 s lang bei einer Temperatur von 150 bis 250°C gehalten. Anschließend wird die Folie in üblicher Weise aufgewickelt.

[0045] Als generelle Anweisung zur Erreichung des erfindungsgemäßen R-Werts und des erfindungsgemäßen e_{max} -Verhältnisses kann zweckmäßiger Weise so verfahren werden, dass man – ausgehend von einem Parametersatz bei dem Folie mit nicht erfindungsgemäßen R-Werten und e_{max} -Verhältnissen erhalten werden – entweder:

- die Strecktemperatur in MD-Richtung um $\Delta T = 3$ bis 15 K erhöht, bevorzugt um $\Delta T = 5$ bis 12 K erhöht und besonders bevorzugt um $\Delta T = 7$ bis 10 K erhöht oder
- das Streckverhältnis in MD-Richtung um $\Delta \lambda = 0.3$ bis 0.8 erniedrigt, bevorzugt um $\Delta \lambda = 0.35$ bis 0.7 erniedrigt und besonders bevorzugt um $\Delta \lambda = 0.4$ bis 0.6 erniedrigt oder
- die Strecktemperatur in TD-Richtung um $\Delta T = 4$ bis 15 K erhöht, bevorzugt um $\Delta T = 5$ bis 12 K erhöht und besonders bevorzugt um $\Delta T = 6$ bis 10 K erhöht oder
- das Streckverhältnis in TD-Richtung um $\Delta \lambda = 0.3$ bis 0.8 erniedrigt, bevorzugt um $\Delta \lambda = 0.35$ bis 0.7 erniedrigt und besonders bevorzugt um $\Delta \lambda = 0.4$ bis 0.6 erniedrigt.

[0046] Sofern zweckmäßig, können auch eine oder mehrere der obigen Maßnahmen a) bis d) miteinander kombiniert werden. Als besonders günstig hat es sich dabei erwiesen, die Maßnahmen a) und b) miteinander zu kombinieren.

[0047] Bevorzugt wird/werden nach der biaxialen Streckung eine oder beide Oberfläche/n der Folie nach einer der bekannten Methoden corona- oder flammbehandelt. Die Behandlungsintensität liegt im Allgemeinen im Bereich über 45 mN/m.

[0048] Zur Einstellung weiterer gewünschter Eigenschaften kann die Folie zusätzlich beschichtet werden. Typische Beschichtungen sind haftvermittelnde, antistatisch, schlupfverbessernd oder dehäsiw wirkende Schichten. Es bietet sich an, diese zusätzliche Schichten über inline coating mittels wässriger Dispersionen vor dem Streckschritt in Querrichtung auf die Folie aufzubringen.

[0049] Zur Verbesserung der Druckfarbenhaftung empfiehlt es sich, wässrige Dispersionen zu verwenden, bei denen die Wirkstoffe auf Basis von Acrylaten aufgebaut sind. Hier wiederum empfiehlt es sich, bevorzugt solche Acrylate zu verwenden, die nicht zur Gelbverfärbung des Regenerates führen. In diesem Zusammenhang wird hier ausdrücklich auf Beschichtungen verwiesen, wie sie z. B. in der EP-A-0 605 130 beschrieben sind.

[0050] Die erfindungsgemäße Folie zeichnet sich durch eine gute Verarbeitbarkeit, insbesondere aber durch ein hervorragendes Abziehverhalten der Folie vom Becher aus. Insbesondere ist bei der erfindungsgemäßen Folie die Tendenz zum Ein- und Weiterreißen und zum Delaminieren äußerst gering.

[0051] Außerdem besticht die Folie durch einen hervorragenden Weißgrad, der der Folie zusätzlich ein sehr attraktives, werbewirksames Aussehen verleiht.

[0052] Bei der Herstellung der Folie ist gewährleistet, dass das Regenerat in einer Konzentration von 20 bis 60 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Folie, wieder der Extrusion zugeführt werden kann, ohne dass dabei die physikalischen Eigenschaften der Folie nennenswert negativ beeinflusst werden.

[0053] Die nachstehende Tabelle (Tabelle 1) fasst die wichtigsten erfindungsgemäßen Folieneigenschaften noch einmal zusammen.

Tabelle 1

	Erfindungsgemäßer Bereich	Erfindungsgemäßer Bereich	Erfindungsgemäßer Bereich	Einheit	Messmethode
R-Wert	< 45	< 42	< 40	daN/mm ²	intern
e_{max} -Verhältnis	< 2.5	< 2.2	< 2.0		intern
Transparenz	< 60	< 55	< 50	%	
Weißgrad	> 60	> 65	> 70	%	Berger
Dicke	10 - 150	15 - 125	20 - 100	µm	
Glanz (20° Messwinkel)	> 40	> 45	> 50		
Füllstoffkonzentration der Basisschicht	> 3	> 4	> 5	%	

[0054] Zur Charakterisierung der Rohstoffe und der Folien wurden die folgenden Messwerte benutzt:

Transparenz

[0055] Die Transparenz wird nach ASTM-D 1033-77 gemessen.

Weißgrad

[0056] Der Weißgrad wird nach Berger bestimmt, wobei in der Regel mehr als 20 Folienlagen aufeinander gelegt werden: Die Bestimmung des Weißgrades erfolgt mit Hilfe des elektrischen Remissionsphotometers® "ELREPHO" der Firma Zeiss, Oberkochen (DE), Normlichtart C, 2° Normalbeobachter. Der Weißgrad wird als $WG = RY + 3RZ - 3RX$ definiert.

[0057] WG = Weißgrad, R_x , R_y , R_z = entsprechende Reflexionsfaktoren bei Einsatz des Y-, Z- und X-Farbmessfilters. Als Weißstandard wird ein Pressling aus Bariumsulfat (DIN 5033, Teil 9) verwendet. Eine ausführliche Beschreibung ist z. B. in Hansl Loos "Farbmessung", Verlag Beruf und Schule, Itzehoe (1989), beschrieben.

SV (DCE), IV (DCE)

[0058] Die Standardviskosität SV (DCE) wird angelehnt an DIN 53726 in Dichloressigsäure gemessen.

[0059] Die intrinsische Viskosität (IV) berechnet sich wie folgt aus der Standardviskosität (SV)

$$IV (DCE) = 6.67 \cdot 10^{-4} SV (DCE) + 0.118$$

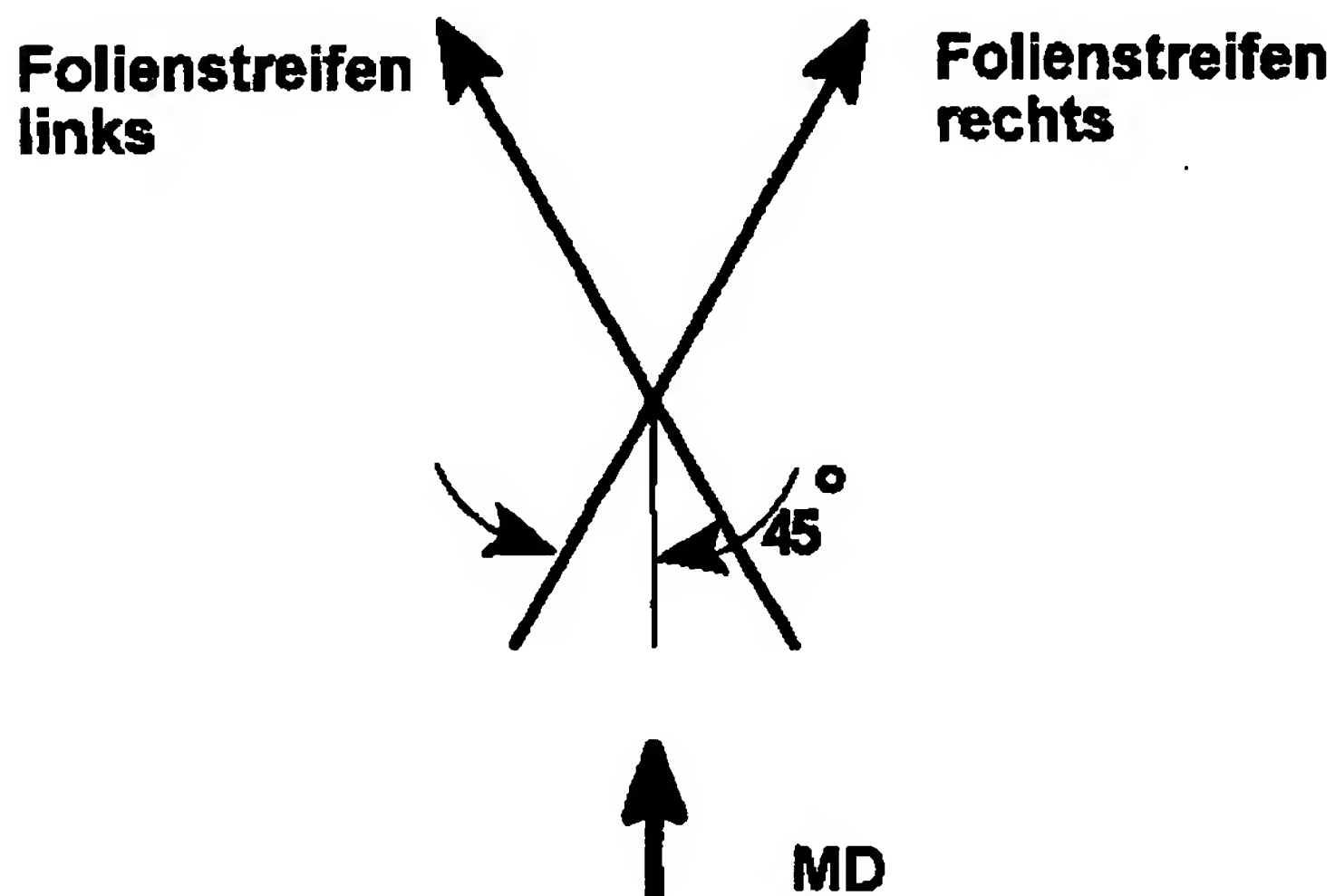
Oberflächenspannung

[0060] Die Oberflächenspannung wurde mittels der so genannten Tintenmethode (DIN 53 364) bestimmt.

Glanz

[0061] Der Glanz wurde nach DIN 67 530 bestimmt. Gemessen wurde der Reflektorwert als optische Kenngröße für die Oberfläche einer Folie. Angelehnt an die Normen ASTM-D 523-78 und ISO 2813 wurde der Einstrahlwinkel mit 20° eingestellt. Ein Lichtstrahl trifft unter dem eingestellten Einstrahlwinkel auf die ebene Prüffläche und wird von dieser reflektiert bzw. gestreut. Die auf den fotoelektronischen Empfänger auffallenden Lichtstrahlen werden als proportionale elektrische Größe angezeigt. Der Messwert ist dimensionslos und muss mit dem Einstrahlwinkel angegeben werden.

Bestimmung des R-Wertes



[0062] Der R-Wert der Folie wird direkt nach der Herstellung der Folie in der Mitte der Folienbahn gemessen. Wie die Skizze zeigt, werden dazu 2 Folienstreifen von 15 mm Breite und 200 mm Länge (rechts und links) jeweils unter 45° zur Maschinenrichtung aus der Bahnmitte der Folie herausgeschnitten und in ein Zug-Dehnungsmessgerät (z. B. Zwick, Instron) eingespannt und gedehnt. Der R-Wert wird unter Zugrundelegung folgender Gleichung berechnet:

$$R\text{-Wert} = 1/3 \times (\sigma_{30\%} - \sigma_{0.2\%}) \text{ in daN/mm}^2$$

[0063] In dieser Gleichung haben die Messgrößen $\sigma_{30\%}$ und $\sigma_{0.2\%}$ die folgende Bedeutung:

$\sigma_{30\%}$, Zugspannung in der Folie bei 30% Dehnung, gemessen unter 45° zur Maschinenrichtung (MD), einmal zur linken und einmal zur rechten Seite der MD-Richtung.

$\sigma_{0.2\%}$, Zugspannung in der Folie bei 0.2% Dehnung, gemessen unter 45° zur Maschinenrichtung (MD), einmal zur linken und einmal zur rechten Seite der MD-Richtung.

[0064] Bei der erfindungsgemäßen Folie muss der R-Wert der Folie kleiner sein als:

$$R\text{-Wert} < 45 \text{ daN/mm}^2, \text{ rechts und links.}$$

Bestimmung des e_{\max}

[0065] Das e_{\max} -Verhältnis wird direkt nach der Herstellung der Folie über die gesamte Breite der Folienbahn (über die Breite der Maschinenrolle) gemessen. Wie bei der Messung des R-Wertes wird auch das e_{\max} -Verhältnis unter einem Winkel von 45° zur Maschinenrichtung (MD-Richtung) und zwar einmal rechts zur MD-Richtung und das andere Mal links zur Maschinenrichtung gemessen. In der Folienbahnmitte ist das e_{\max} -Verhältnis nahezu eins und vergrößert sich umso mehr, je weiter man von der Folienbahnmitte zu den Folienrändern gelangt. Der Abstand zwischen zwei Messpunkten (in TD-Richtung, = Breitenrichtung der Folienbahn) beträgt dabei üblicher Weise 50 cm. Wie bei der Bestimmung des R-Wertes werden auch hier 2 Folienstreifen von 15 mm Breite und 200 mm Länge (rechts und links) jeweils unter 45° zur Maschinenrichtung aus der Folienbahn herausgeschnitten. Die Muster werden dann wiederum in das Zug-Dehnungsmessgerät (z. B. Zwick, Instron) eingespannt und gedehnt. Das e_{\max} -Verhältnis wird unter Zugrundelegung der folgenden Gleichung berechnet:

e_{\max} -Verhältnis = $\epsilon_{\text{links}}/\epsilon_{\text{rechts}}$ oder $\epsilon_{\text{rechts}}/\epsilon_{\text{links}}$ (welches definitions gemäß immer > 1 ist)

ϵ_{links} ist die Reißdehnung der Folie unter 45° zu MD, links

15 ϵ_{rechts} ist die Reißdehnung der Folie unter 45° zu MD, rechts.

[0066] Von der Definition her ist das e_{\max} -Verhältnis immer größer als 1. Bei der Messung über die Folienbahnbreite folgt daraus, dass ungefähr für die erste Hälfte der Bahn die erste Relation ($\epsilon_{\text{links}}/\epsilon_{\text{rechts}}$) gilt und für die zweite Hälfte der Bahn die zweite Relation gilt ($\epsilon_{\text{rechts}}/\epsilon_{\text{links}}$). Bei der erfindungsgemäßen Folie muss der R-Wert der Folie kleiner sein als: e_{\max} -Verhältnis < 2.5 , rechts und links.

Beurteilung des Abziehverhaltens der Folie vom Becher

[0067] Die Beurteilung des Abziehverhaltens der Folie vom Becher erfolgt visuell. Bei diesem Prüfverfahren wird die Folie (der Deckel) auf den Becher geklebt (Siegelack war Novacoate) und nach einer Lagerzeit (Aushärtzeit) von 48 h vom Becher abgezogen. Das Abziehverhalten wird mit ++ (= gut) bewertet, wenn die Folie dabei weder einreißt noch delaminiert. — (= schlecht) bewertet, wenn die Folie dabei einreißt und/oder delaminiert.

Beispiel 1

[0068] Chips aus Polyethylenterephthalat (hergestellt über das Umesterungsverfahren mit Mn als Umesterungskatalysator, Mn-Konzentration: 70 ppm) wurden bei 150°C auf eine Restfeuchte von unterhalb 100 ppm getrocknet und dem Extruder für die Basisschicht B zugeführt. Ebenfalls wurden Chips aus Polyethylenterephthalat und einem Füllstoff (Titan-dioxid und Calciumcarbonat) dem Extruder für die Basisschicht B zugeführt.

35 [0069] Es wurde durch Extrusion und anschließende stufenweise Orientierung in Längs- und in Querrichtung eine weiße, einschichtige Folie mit einer Gesamtdicke von 65 μm hergestellt.

Basisschicht B

40 92.6 Gew.-% Polyethylenterephthalat mit einem SV-Wert von 800

7.0 Gew.-% Titandioxid (®Hombitan LW-S-U, der Fa. Sachtleben) mit einem mittlerem Teilchendurchmesser von ca. 0.3 μm

0.4 Gew.-% Calciumcarbonat (®Hydrocarb 70 der Fa. Omya) mit einem mittleren Teilchendurchmesser von ca. 1.8 μm .

[0070] Die Herstellungsbedingungen in den einzelnen Verfahrensschritten waren:

45 Längsstreckung:

Temperatur: $80-125^\circ\text{C}$

Längsstreckverhältnis: 3.6

Querstreckung:

Temperatur $80-135^\circ\text{C}$

50 Querstreckverhältnis: 4.0.

[0071] Die Folie zeigte das gewünschte Verarbeitungsverhalten und insbesondere das gewünschte Verhalten beim Abziehen der Folie vom Becher. Die Folie reißt nicht ein und zeigt keine Tendenz zum Delaminieren.

[0072] Die erzielten Folieneigenschaften derart hergestellter Folien sind in der Tabelle 2 dargestellt. In Fig. 2 ist das e_{\max} -Verhältnis über die Folienbahnbreite grafisch dargestellt.

Beispiel 2

[0073] Im Vergleich zu Beispiel 1 wurde nur die Rezeptur für die Basischicht geändert:

Basisschicht B

60 93.0 Gew.-% Polyethylenterephthalat mit einem SV-Wert von 800

7.0 Gew.-% Titandioxid (Hombitan LW-S-U, der Fa. Sachtleben) mit einem mittlerem Teilchendurchmesser von ca. 0.3 μm .

Vergleichsbeispiel 1

[0074] Im Vergleich zu Beispiel 1 wurden jetzt die Verfahrensbedingungen geändert.

Längsstreckung:
Temperatur 80–118°C
Längsstreckverhältnis: 4.0
Querstreckung:
Temperatur: 80–125°C
Querstreckverhältnis: 4.0.

[0075] Die Folie zeigte nicht das gewünschte Verarbeitungsverhalten und insbesondere nicht das gewünschte Verhalten beim Abziehen der Folie vom Becher. Die Folie reißt ein und zeigte eine hohe Tendenz zum Delaminieren.

Tabelle 2

Beispiel	R-Wert (daN/mm ²)	e _{max} -Verhältnis	Verhalten beim Abziehen	Verhalten beim Abziehen	Verhalten beim Abziehen	Verhalten beim Abziehen	Verhalten beim Abziehen	Verhalten beim Abziehen	Verhalten beim Abziehen
Beispiel 1	65	5	39	1.8	28	90	60	++	++
Beispiel 2	65	5	38	1.8	29	88	60	++	++
Vergleichs- beispiel 1	65	5	50	2.7	28	90	60	+	-

Verarbeitungsverhalten

++ gut
- schlecht

Patentansprüche

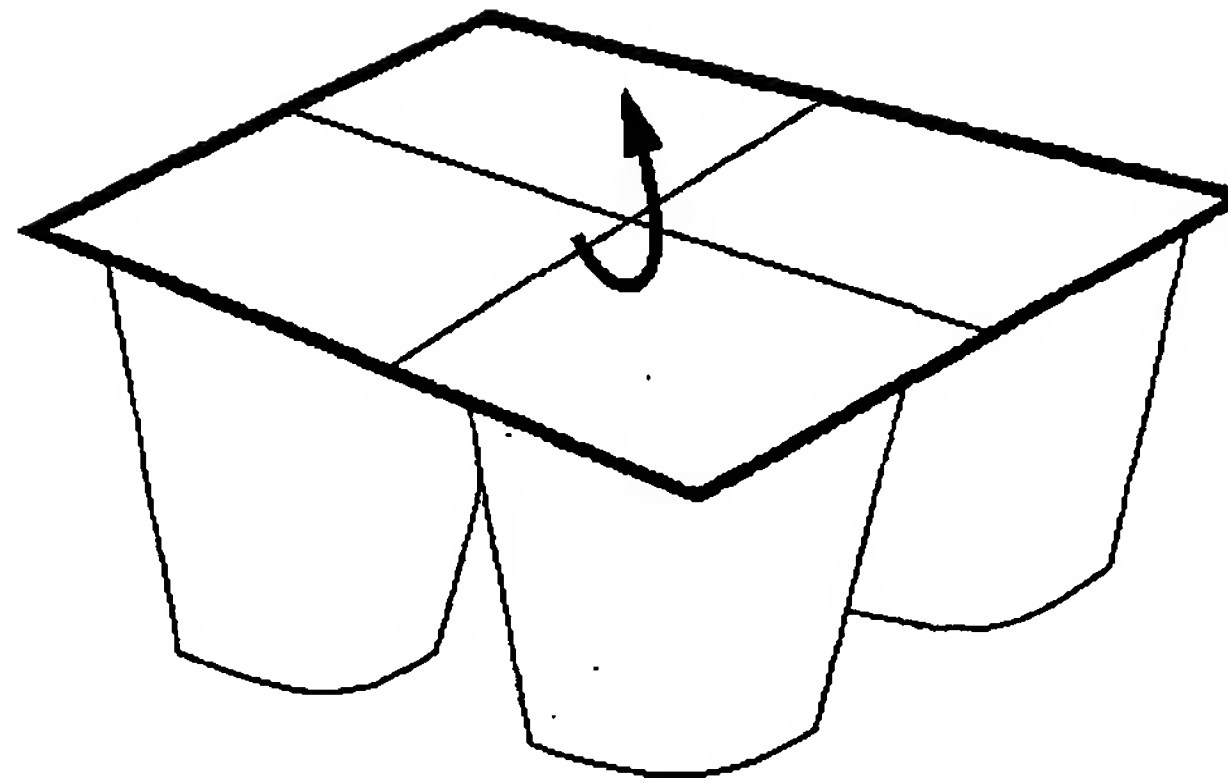
- Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie mit mindestens einer Basisschicht B, die **dadurch gekennzeichnet** ist, daß der R-Wert \leq als 45 daN/mm² und das e_{max}-Verhältnis \leq als 2.5 ist.
- Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der R-Wert \leq 42 daN/mm² ist.
- Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das e_{max}-Verhältnis als \leq 2.2 ist.
- Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Folie einschichtig ist.
- Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass es sich um eine symmetrische mehrschichtige Folie handelt.
- Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Gesamtdicke der Polyesterfolie 10 bis 150 µm beträgt.
- Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß sie Füllstoffe in einer Konzentration von mehr als 3 Gew.-% bezogen auf die Masse der Basisschicht der Folie, enthält.
- Weiße, biaxial orientierte Polyesterfolie nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Füllstoffe aus einem oder mehreren der folgenden Materialien ausgewählt sind: Calciumcarbonat, amorphe Kieselsäure, Talk, Magnesiumcarbonat, Bariumcarbonat, Calciumsulfat, Bariumsulfat, Lithiumphosphat, Calciumphosphat, Magnesiumphosphat, Aluminiumoxid, Lithiumfluorid, Calcium-, Barium-, Zink- oder Mangan-Salze der bei der Polyesterherstellung eingesetzten Dicarbonsäuren, Titandioxid, Kaolin und Polymerpartikel.
- Verfahren zur Herstellung einer Folie nach Anspruch 1, wobei man im Falle einer Monofolie die Schmelze und im Falle einer Mehrschichtfolie die den einzelnen Schichten der Folie entsprechenden Schmelzen durch eine Flachdüse extrudiert, im Falle einer Mehrschichtfolie koextrudiert, die so erhaltene Folie zur Verfestigung auf mindestens einer Walze abgezogen wird, die Folie anschließend biaxial gestreckt, die biaxial gestreckte Folie thermofixiert und gegebenenfalls an der zur Behandlung vorgesehenen Oberflächenschicht corona- oder flammbehandelt wird, dadurch gekennzeichnet, dass die biaxiale Streckung mindestens eine Streckung in Längsrichtung der Folie (in Maschinenrichtung = MD-Richtung) und mindestens eine Querstreckung der Folie (senkrecht zur Maschinenrichtung = TD-Richtung) umfaßt und wobei im Vergleich zu einer Folie, deren R-Wert $>$ 45 daN/mm² und deren e_{max}-Verhältnis $>$ 2.5 ist, entweder:
 - a) die Strecktemperatur in MD-Richtung um $\Delta T = 3$ bis 15 K erhöht ist oder
 - b) das Streckverhältnis in MD-Richtung um $\Delta \lambda = 0.3$ bis 0.8 erniedrigt ist oder
 - c) die Strecktemperatur in TD-Richtung um $\Delta T = 4$ bis 15 K erhöht ist oder
 - d) das Streckverhältnis in TD-Richtung um $\Delta \lambda = 0.3$ bis 0.8 erniedrigt ist oder
 eine oder mehrere der obigen Maßnahmen a) bis d) miteinander kombiniert sind.

10. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass entweder:
- a) die Strecktemperatur in MD-Richtung bei 80 bis 130°C erfolgt oder
 - b) das Streckverhältnis in MD-Richtung $\lambda = 2.5$ bis 4.0 beträgt oder
 - c) die Strecktemperatur in TD-Richtung bei 90 bis 135°C erfolgt oder
 - d) das Streckverhältnis in TD-Richtung $\lambda = 3.5$ bis 4.0 beträgt oder
- eine oder mehrere der obigen Maßnahmen a) bis d) miteinander kombiniert sind.
11. Verwendung einer Folie nach Anspruch 1 als Deckelfolie.

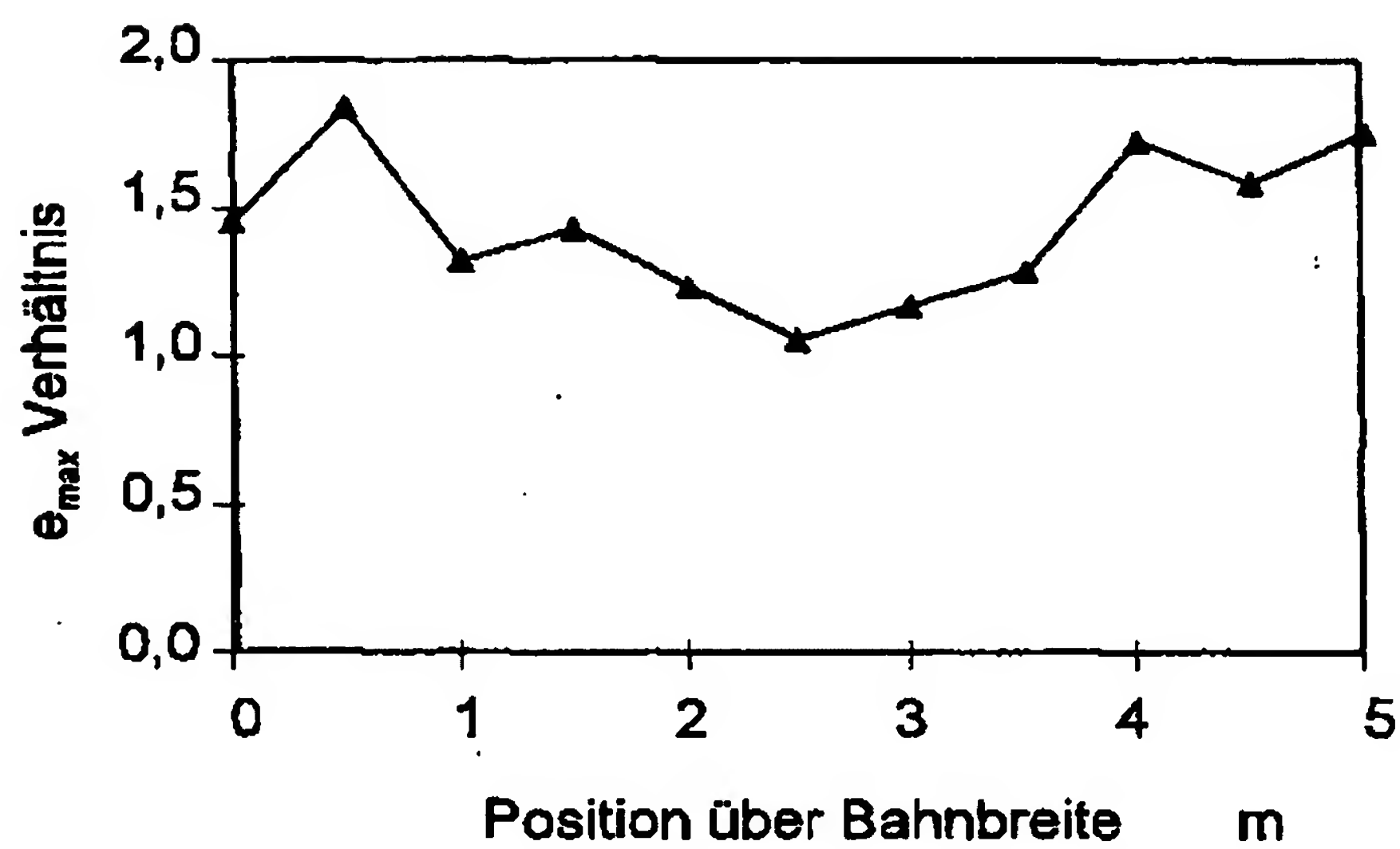
Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

Figur 1



Figur 2



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ ~~BLACK BORDERS~~
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ ~~FADED TEXT OR DRAWING~~
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.